



DEUTSCHES  
PATENTAMT

⑳ Aktenzeichen: P 33 18 098.9  
㉔ Anmeldetag: 18. 5. 83  
㉕ Offenlegungstag: 22. 11. 84

⑥ Int. Cl. 3:  
B 01 J 19/00  
B 01 J 8/00  
C 01 B 17/80  
C 01 C 1/04  
C 07 C 31/04  
C 07 C 47/04

DE 33 18 098 A 1

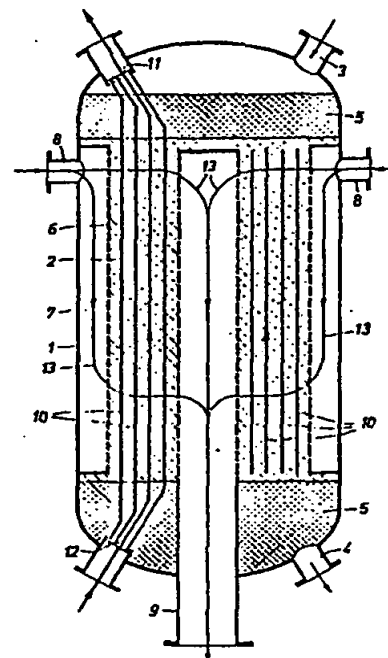
㉚ Anmelder:  
Linde AG, 6200 Wiesbaden, DE

㉛ Erfinder:  
Kruis, Bernhard, Dr., 8023 Pullach, DE; Link, Heinz,  
Dipl.-Ing., 8026 Zell, DE; Riquarts, Hans-P.,  
Dr.-Ing.habil., 8023 Pullach, DE

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑤4 Verfahren und Reaktor zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion

Bei einem Verfahren zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion wird ein reagierendes Fluid 13 in radialer Richtung durch eine Reaktionszone 2 geführt. In die Reaktionszone sind Rohre 10 eingelagert, die zur Führung eines Heiz- oder Kühlfluides dienen. Die Rohre verlaufen in axialer Vorzugsrichtung durch die Reaktionszone (Fig. 1).



DE 33 18 098 A 1

18.05.83

3318098

1

5

(H 1374; H 1378)

H 83/29  
Fa/fl  
17.5.83

10

Patentansprüche

- 15 1. Verfahren zur Durchführung einer endo- oder exothermen Reaktion, bei dem ein reagierendes Fluid eine durch ein Heiz- oder Kühlfluid indirekt beheizte oder gekühlte Reaktionszone durchströmt, wobei das Heiz- oder Kühlfluid in axialer Vorzugsrichtung durch die Reaktionszone
- 20 strömt, dadurch gekennzeichnet, daß das reagierende Fluid in radialer Richtung durch die Reaktionszone geführt wird.
2. Verfahren nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß
- 25 das reagierende Fluid mindestens zwei axial voneinander getrennte Reaktionsteilzonen durchströmt.
3. Verfahren nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß dem reagierenden Fluid nach Durchströmen einer Reaktionsteilzone kaltes unreaktiertes Fluid zugemischt wird.
- 30 4. Verfahren nach Anspruch 2 oder 3, dadurch gekennzeichnet, daß vor Eintritt in die zweite Reaktionsteilzone reagierte Anteile von dem Fluid abgetrennt werden.

35

- 1 5. Reaktor zur Durchführung des Verfahrens nach Anspruch 1  
mit einer Reaktionszone und mit in der Reaktionszone  
verlaufenden Rohren zur Führung eines Heiz- oder Kühl-  
fluids, die in einer Vorzugsrichtung verlaufen, sowie mit  
5 Einrichtungen zur Zuführung eines reagierenden und zur  
Abführung eines reagierten Fluides, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Einrichtung zur Zuführung und die Einrichtung  
zur Abführung in Ebenen senkrecht zur Vorzugsrichtung  
der Rohre (10) angeordnet sind.
- 10 6. Reaktor nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß  
eine erste Einrichtung zur Zu- oder Abführung durch  
einen Strömungsraum (7) am Umfang der Reaktionszone  
gebildet ist, der durch einen mit Durchlaßöffnungen  
15 versehenen Mantel (6) von der Reaktionszone abgetrennt  
ist.
7. Reaktor nach Anspruch 5 oder 6, dadurch gekennzeichnet,  
daß eine zweite Zu- oder Abführung durch einen Strömungs-  
raum im Inneren der Reaktionszone gebildet ist, der  
20 durch ein mit Durchlaßöffnungen versehenes Zentralrohr  
(9) von der umgebenden Reaktionszone abgetrennt ist.
8. Reaktor nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß  
25 das Zentralrohr (9) zugleich als Wickelkern für die  
Heiz- oder Kühlrohre (10) ausgebildet ist.
9. Reaktor nach einem der Ansprüche 5 bis 8, dadurch gekennzeichnet,  
daß in der Reaktionszone mindestens eine senk-  
recht zur Achsrichtung verlaufende Trennwand (15, 16)  
30 angeordnet ist.
10. Reaktor nach einem der Ansprüche 5 bis 9, dadurch gekennzeichnet,  
daß die Heiz- oder Kühlflächendichte  
35 in der Reaktionszone variiert.

1 11. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 10, dadurch gekennzeichnet, daß die Reaktionszone eine Katalysatorschüttung (2) enthält.

5

10

15

20

25

30

35

1

LINDE AKTIENGESELLSCHAFT

5

(H 1374, H 1378)

H 83/29  
Fa/fl  
17.5.83

10

Verfahren und Reaktor zur Durchführung  
einer endo- oder exothermen Reaktion

15 Die Erfindung betrifft ein Verfahren zur Durchführung einer  
endo- oder exothermen Reaktion, bei dem ein  
reagierendes Fluid eine durch ein Heiz- oder Kühlfluid in-  
direkt beheizte oder gekühlte Reaktionszone durchströmt,  
wobei das Heiz- oder Kühlfluid in axialer Vorzugsrichtung  
20 durch die Reaktionszone strömt, sowie einen Reaktor zur  
Durchführung des Verfahrens.

Ein derartiges Verfahren ist für Synthesereaktionen bereits  
bekannt. So zeigt die DE-OS 30 07 202 einen Reaktor zur  
25 Durchführung einer Methanolsynthese mit einer zylindrischen  
Reaktionszone, die mit einer Schüttung aus Katalysatorteil-  
chen gefüllt ist. Das Synthesegas wird in axialer Richtung  
durch die Reaktionszone geführt. In der Katalysatorschüt-  
tung sind Rohre zur Führung eines Kühlfluids angeordnet,  
30 durch welches die bei der Reaktion freiwerdende Wärme ab-  
geführt wird. Die Rohre sind um ein Kernrohr gewickelt und  
werden von dem Synthesegas im wesentlichen quer angeströmt.  
Die Vorzugsströmungsrichtung für das Kühlfluid verläuft  
in axialer Richtung, so daß das Kühlfluid parallel oder  
35 im Gegenstrom zum Synthesegas strömt. Bei diesem Verfahren

- 1 wird in der Reaktionszone ein weitgehend isothermes Temperaturprofil erzielt.

Allerdings muß bei diesem Verfahren aufgrund der Strömungsverhältnisse ein großer Druckabfall für das Synthesegas beim Durchgang durch die Reaktionszone in Kauf genommen werden. Neben den energetischen Nachteilen, die dieser Druckverlust mit sich bringt, ist überdies die maximal mögliche Baugröße des Reaktors durch den Druckabfall begrenzt.

10

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein Verfahren der eingangs genannten Art zu entwickeln, das mit einem geringen Druckabfall des reagierenden Fluides durchführbar ist und das auch die Verarbeitung großer Fluidmengen ermöglicht, wobei im Reaktionsraum der vorteilhafte annähernd isotherme Temperaturverlauf erhalten bleiben soll.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäß dadurch gelöst, daß das reagierende Fluid in radialer Richtung durch die Reaktionszone geführt wird.

Bei dem erfindungsgemäßen Verfahren erfolgt die Zu- oder Abführung des reagierenden Fluides bzw. des Reaktionsproduktes am Umfang der Reaktionszone, während die Ab- oder Zuführung des Reaktionsproduktes bzw. des reagierenden Fluides in der Achse der Reaktionszone erfolgt. Vorteilhafterweise wird dabei das reagierende Fluid derart geführt, daß sich das "kalte Ende" des Reaktionsprozesses am Umfang befindet, damit der Reaktorausmantel keinen hohen Temperaturen ausgesetzt ist. Dies bedeutet, daß bei einer exothermen Reaktion das reagierende Fluid mit Vorteil radial von außen nach innen geführt wird, während umgekehrt bei einer endothermen Reaktion das reagierende Fluid mit Vorteil radial von innen nach außen geführt wird.

35

1 Die erfindungsgemäße Verfahrensführung ermöglicht eine Bei-  
behaltung des weitgehend isothermen Temperaturverlaufs in  
der Reaktionszone, wobei nunmehr allerdings der Druckabfall,  
den das reagierende Fluid beim Durchgang durch die Reaktions-  
5 zone erleidet, minimiert ist und nicht mehr von der Baulänge  
des Reaktors abhängt. Auch bei sehr großen Reaktoreinheiten  
bleibt daher, bei festem Reaktorquerschnitt, ein nied-  
riger Druckabfall erhalten. Die erfindungsgemäße Strömungs-  
führung ergibt hohe Wärmegangszahlen, verringert die Über-  
10 hitzungsgefahr in der Reaktionszone ("Hot Spots") und ver-  
kleinert die Temperaturgradienten in der Reaktionszone.

Das erfindungsgemäße Verfahren eignet sich sowohl für die  
Durchführung katalytischer Reaktionen, wie beispielsweise  
15 Synthesen, als auch für nichtkatalytische Reaktionen, wie  
z.B. Spaltreaktionen.

Es erweist sich als vorteilhaft, wenn in weiterer Ausge-  
staltung des erfindungsgemäßen Verfahrens das reagierende  
20 Fluid mindestens zwei axial voneinander getrennten Reaktions-  
teilzonen durchströmt. Hierbei wird, je nach den Verfahrens-  
bedingungen, das reagierende Fluid in Parallelführung durch  
die Reaktionsteilzonen geführt oder es durchströmt die  
Teilzonen zickzackförmig nacheinander.

25 Die Unterteilung der Reaktionszone in mehrere Teilzonen  
bietet den Vorteil, daß in der Reaktionszone verschiedene  
Temperaturbereiche einstellbar sind. Die Temperatur läßt  
sich beispielsweise durch Variation der örtlichen Kühlflä-  
30 chendichte variieren. Auf diese Weise wird ein Umsatz-Tem-  
peratur-Profil erzielt, das den jeweiligen verfahrenstech-  
nischen und/oder wirtschaftlichen Prozeß-Optimalbedingungen  
am nächsten kommt.

35 Es kann sich hierbei als zweckmäßig erweisen, wenn dem rea-

1   gierenden Fluid nach Durchströmen einer Reaktionsteilzone  
kaltes unreaktiertes Fluid zugemischt wird.

In Weiterbildung des erfindungsgemäßen Verfahrens wird vor-  
5   geschlagen, daß vor Eintritt in die zweite Reaktionsteil-  
zone reagierete Anteile von dem Fluid abgetrennt werden.

Am Beispiel einer katalysierten Synthese von  $\text{SO}_2$  aus einem  
Gemisch von  $\text{SO}_3$ ,  $\text{O}_2$  und Inertgasen bedeutet dies, daß in  
10   der ersten Reaktionsteilzone gebildetes  $\text{SO}_3$  von dem Gas-  
strom abgetrennt wird, bevor dieser in die zweite Reaktions-  
teilzone geleitet wird.

Die Erfindung betrifft weiterhin einen Reaktor zur Durch-  
15   führung des erfindungsgemäßen Verfahrens mit einer Reaktions-  
zone und mit in der Reaktionszone verlaufenden Rohren zur  
Führung eines Heiz- oder Kühlfluids, die in einer Vorzugs-  
richtung verlaufen, sowie mit Einrichtungen zur Zuführung  
eines reagierenden und zur Abführung eines reagierten Flui-  
20   des, der dadurch gekennzeichnet ist, daß die Einrichtungen  
zur Zuführung und die Einrichtungen zur Abführung in Ebenen  
senkrecht zur Vorzugsrichtung der Rohre angeordnet sind.

Gemäß einer bevorzugten Ausgestaltung des erfindungsgemäßen  
25   Reaktors ist eine erste Einrichtung zur Zu- und Abführung  
durch einen Strömungsraum am Umfang der Reaktionszone ge-  
bildet, der durch einen mit Durchlaßöffnungen versehenen  
Mantel von der Reaktionszone abgetrennt ist. Der Mantel  
ist zweckmäßigerweise mit Abstand zu dem Gehäuse des Reak-  
30   tors angeordnet und bildet mit diesem einen Strömungsraum  
von ringförmigem Querschnitt.

Bei einer weiteren vorteilhaften Ausgestaltung ist eine  
zweite Zu- oder Abführung durch einen Strömungsraum im:  
35   Inneren der Reaktionszone gebildet, der durch ein mit



- 1 Durchlaßöffnungen versehenes Zentralrohr von der umgebenden Reaktionszone abgetrennt ist.

Es erweist sich als günstig, wenn das Zentralrohr zugleich  
5 als Wickelkern für die Heiz- oder Kühlrohre ausgebildet ist.

- In vorteilhafter Weiterbildung des Erfindungsgegenstandes wird vorgeschlagen, daß in der Reaktionszone mindestens  
10 eine senkrecht zur Achsrichtung verlaufende Trennwand angeordnet ist.

- Es erweist sich weiterhin als zweckmäßig, wenn die Heiz- oder Kühlflächendichte in der Reaktionszone variiert.  
15 Die lokale Temperatur kann mittels dieser Maßnahme besser auf den vom Verfahrensablauf her günstigsten Wert eingestellt werden.

- Eine unterschiedliche Kühlflächendichte läßt sich beispielsweise  
20 weise dadurch erreichen, daß Rohre mit unterschiedlichen Durchmessern und/oder unterschiedlichen gegenseitigem Abstand und/oder unterschiedlichen Kühlrippen oder Kühlflossen verwendet werden.

- 25 Bei einer bevorzugten Ausgestaltung des erfindungsgemäßen Reaktors enthält die Reaktionszone eine Katalysatorschüttung.

- Der erfindungsgemäße Reaktor eignet sich vorzugsweise für  
30 Reaktionen mit rascher Produktbildung, die mit einer relativ kurzen durchströmten Reaktionszone auskommen, und die zum Erreichen großer Produktmengen große Strömungsquerschnitte benötigen. Ein Beispiel für eine derartige Reaktion ist die Synthese von  $\text{SO}_3$  aus  $\text{SO}_2$ .

35

1 Weitere Anwendungsbeispiele für den erfindungsgemäßen Reak-  
to sind Methanolsynthese, Ammoniaksynthese, Formaldehyd-  
erzeugung, Benzingewinnung aus Methanol, Methanisierung  
und CO-Shift.

5

Die Erfindung sowie weitere Einzelheiten der Erfindung  
werden anhand von schematisch dargestellten Ausführungs-  
beispielen näher erläutert.

10 Hierbei zeigen:

Figur 1 einen erfindungsgemäßen Reaktor im Längsschnitt

Figur 2 eine weitere Ausgestaltung eines erfindungsge-  
mäßen Reaktors im Längsschnitt

15 Figur 3 einen Ausschnitt aus einem erfindungsgemäßen  
Reaktor mit einem zugeordneten Temperaturprofil.

Der in Figur 1 dargestellte Reaktor weist ein Gehäuse 1 auf,  
in welchem eine Katalysatorschüttung angeordnet ist. Das

20 Gehäuse 1 enthält eine Einfüllöffnung 3 und eine Entleerungs-  
öffnung 4 für die Katalysatorschüttung 2. Oberhalb und un-  
terhalb der Katalysatorschüttung 2 ist Inertmaterial 5 ein-  
gefüllt, um Bypässe zu vermeiden und um teures Katalysator-  
material einzusparen.

25

Die Katalysatorschüttung ist an ihrem äußeren Umfang durch  
einen mit Durchlaßöffnungen versehenen Mantel 6 begrenzt,  
beispielsweise aus Lochblech und einem Maschensieb. Der  
Mantel 6 ist mit Abstand zu dem Gehäuse 1 angeordnet und

30 bildet mit diesem zusammen einen Raum 7 mit ringförmigem  
Querschnitt. In den Raum 7 münden Stutzen 8 zur Zuführung  
eines reagierenden Fluides. Im Inneren der Katalysator-  
schüttung 2 ist ein Zentralrohr 9 angeordnet, das im Be-  
reich der Katalysatorschüttung 2 mit Perforationen ver-  
35 sehen ist. Das Zentralrohr 9 ist an seiner Oberseite ge-

1 schlossen, während es nach unten durch das Gehäuse 1 nach  
außen geführt und als Abführungsöffnung für reagierendes  
Fluid ausgebildet ist.

5 Innerhalb der Katalysatorschüttung 2 sind Rohre 10 ange-  
ordnet, die an ihren Enden in Rohrsammlern 11, 12 zusammen-  
gefaßt sind. Die Rohre 10 verlaufen in der dargestellten  
Ausführungsform geradlinig, ebensogut könnten die Rohre  
auch um das Zentralrohr 9 gewickelt sein. Die Rohre 10  
10 dienen zur Führung eines Heiz- oder Kühlfluids, je nachdem,  
ob in dem Reaktor eine endo- oder eine exotherme Reaktion  
stattfinden soll. In jedem Fall verläuft die Vorzugsströ-  
mungsrichtung des in den Rohren 10 geführten Fluids in  
axialer Richtung.

15

Wird in dem erfindungsgemäßen Reaktor eine exotherme Syn-  
thesereaktion, z.B. eine Methanol- oder  $\text{NH}_3$ -Synthese, durch-  
geführt, so wird das reagierende Fluid, das sich auf einer  
tieferen Temperatur als das Reaktionsprodukt befindet, über  
20 die Stutzen 8 zugeführt. Das Fluid verteilt sich zunächst  
gleichmäßig in dem Raum 7 und durchströmt anschließend die  
Katalysatorschüttung 2 in radialer Richtung von außen nach  
innen, wie dies durch Pfeile 13 angedeutet ist. Die bei  
der katalytischen Synthese freiwerdende Wärme wird von in  
25 den Rohren 10 geführtem Kühlfluid, z.B. verdampfendem  
Wasser, aufgenommen und abgeführt. Der Verlauf des Kühlfluids  
ist durch Pfeile 14 angedeutet. Nach Durchströmen der Reak-  
tionszone gelangt das reagierte Fluid ins Innere des Zen-  
tralrohres 9 und verläßt den Reaktor durch dieses nach  
30 unten.

Diese Verfahrensführung bei einer exothermen Reaktion  
bietet den Vorteil, daß das Gehäuse 1 durch das reagieren-  
de Fluid, das sich auf einer relativ niedrigen Temperatur  
35 befindet, gekühlt wird. Wird dagegen in dem Reaktor eine

1 endotherme Reaktion durchgeführt, bei der sich das rea-  
gierte Fluid auf einer niedrigeren Temperatur als das rea-  
gierende Fluid befindet, so wird vorzugsweise die Strömungs-  
richtung des reagierenden Fluids umgekehrt, d.h. das rea-  
5 gierende Fluid wird über das Zentralrohr 9 zugeführt und  
durchströmt die Katalysatorschüttung 2 von innen nach außen,  
um anschließend den Reaktor über die Stutzen 8 zu verlassen.

Gundsätzlich ist es auch möglich, den Reaktor auf dem  
10 Kopf stehend zu betreiben, d.h. die Stutzen 8 im unteren  
Bereich anzuordnen und das Zentralrohr 9 nach oben aus dem  
Reaktor zu führen.

Figur 2 zeigt in schematischer Darstellung einen erfin-  
15 dungsgemäßen Reaktor ähnlich denjenigen gemäß Figur 1,  
jedoch mit dem Unterschied, daß die Katalysatorschüttung  
2 durch Trennwände 15, 16 in drei axial voneinander getrenn-  
te Abschnitte 17, 18, 19 unterteilt ist, die Reaktionsteil-  
zonen bilden. Die obere Trennwand 15 reicht außen bis zur  
20 Gehäusewand, während sie innen am Zentralrohr 9 endet. Die  
untere Trennwand 16 endet außen am Mantel 6 und erstreckt  
sich innen über den gesamten Querschnitt des Zentralrohres  
9. Auf diese Weise wird das durch die Stutzen 8 zugeführte  
Fluid entlang der Pfeile 20 auf einem zickzackförmigen  
25 Strömungsweg nacheinander durch die drei Abschnitte 17, 18,  
19 der Katalysatorschüttung 2 geführt. Die Reaktionszone  
wird dadurch verlängert. Bei Bedarf werden in den einzelnen  
Reaktionsteilzonen unterschiedliche Kühlflächendichten  
eingestellt, beispielsweise durch Aufbringen von Kühlrippen  
30 oder Kühlflossen an den Rohren 10. Es ist auch eine Anord-  
nung denkbar, bei der sich die Trennwände nur über die  
Querschnittsfläche der Katalysatorschüttung 2 erstrecken,  
so daß die zwischen den Trennwänden liegenden Abschnitte  
der Katalysatorschüttung parallel vom reagierenden Fluid  
35 durchströmt werden.

- 1 Bei der in Figur 2 dargestellten Ausführungsform wird bei Bedarf dem Fluid 20 nach Durchströmen des ersten Abschnittes 17 und/oder des zweiten Abschnittes 18 kaltes unreakiertes Gas zugemischt, um eine zusätzliche Abkühlung zu erreichen und um den Katalysator besser auszunützen. Die Zuführung erfolgt beispielsweise über in der Figur 2 nicht dargestellte Gaszuführungseinrichtungen in das Zentralrohr 9 oder in den Raum 7 unterhalb der Trennwand 15.
- 10 Figur 3 zeigt einen Ausschnitt aus der Katalysatorschüttung eines erfindungsgemäßen Reaktors, wobei sich hier die Dichte der Kühlrohre 10 in Strömungsrichtung des reagierenden Fluides ändert. Unter diesem Ausschnitt ist der Temperaturverlauf des reagierenden Fluides auf seinem Weg durch die Katalysatorschüttung 2 dargestellt. Das reagierende Fluid tritt mit der Temperatur  $T_E$  in die Reaktionszone ein und erwärmt sich durch die einsetzende Reaktion stark. Die Reaktionswärme wird von dem Kühlfluid abgeführt, das eine Temperatur  $T_K$  besitzt. In dem Bereich, in dem die Maximaltemperatur  $T_M$  zu erwarten ist, sind die Rohrabstände verringert, um die Heizflächendichte zu erhöhen und um eine Überhitzung des Katalysators und/oder unerwünschte Begleitreaktionen zu verhindern. Die Austrittstemperatur beträgt  $T_A$ .

25

30

35

Nummer:

33 18 098

Int. Cl.<sup>3</sup>:

B 01 J 19/00

Anmeldetag:

18. Mai 1983

Offenlegungstag:

22. November 1984

15-

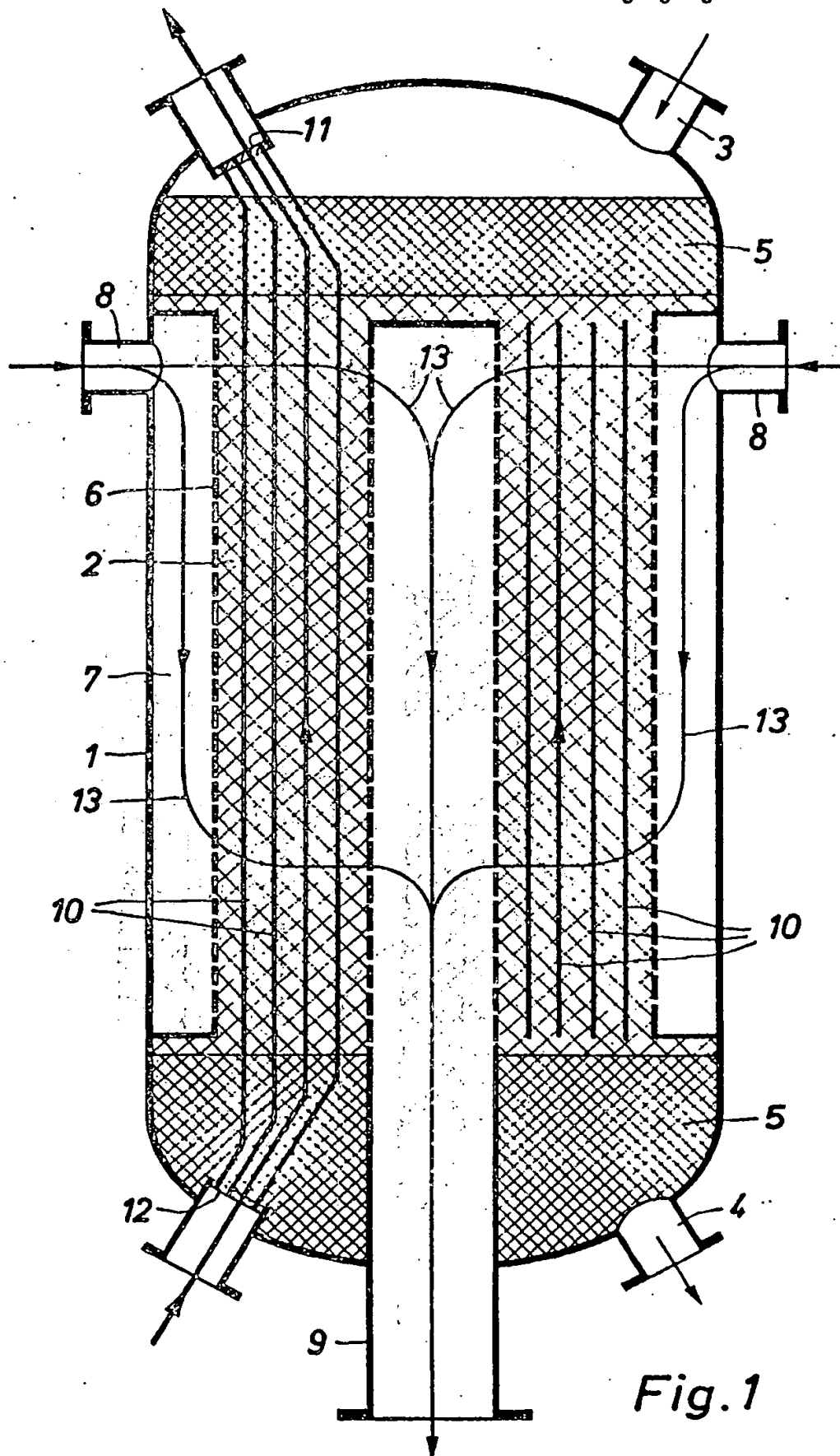


Fig. 1

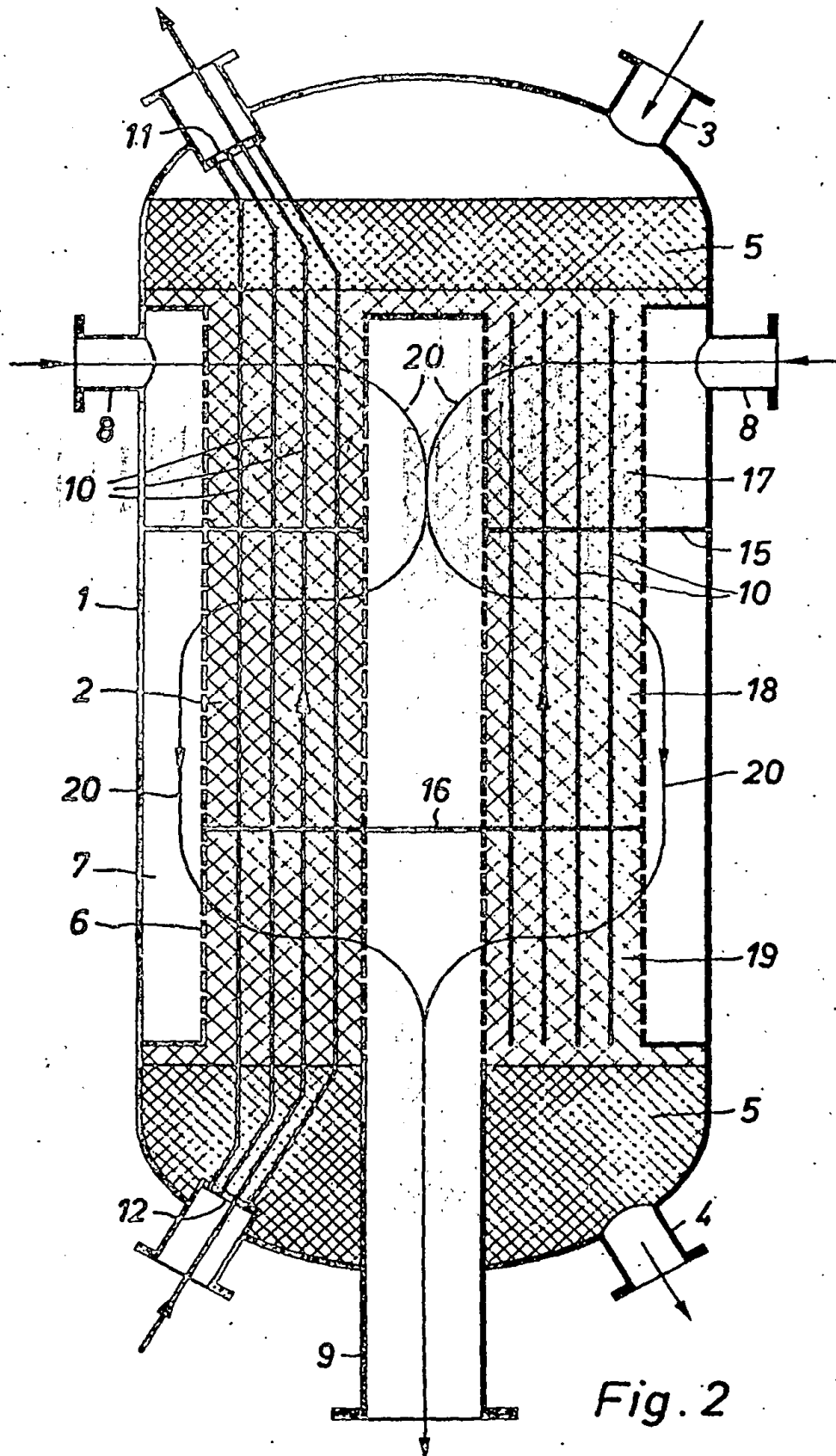


Fig. 2

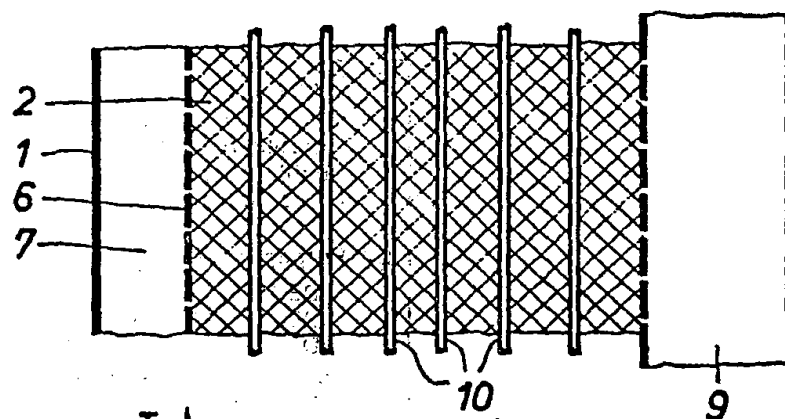


Fig. 3

